

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 05-074443
 (43)Date of publication of application : 26.03.1993

(51)Int.CI.

H01M 2/16
H01M 10/40

(21)Application number : 03-261393
 (22)Date of filing : 13.09.1991

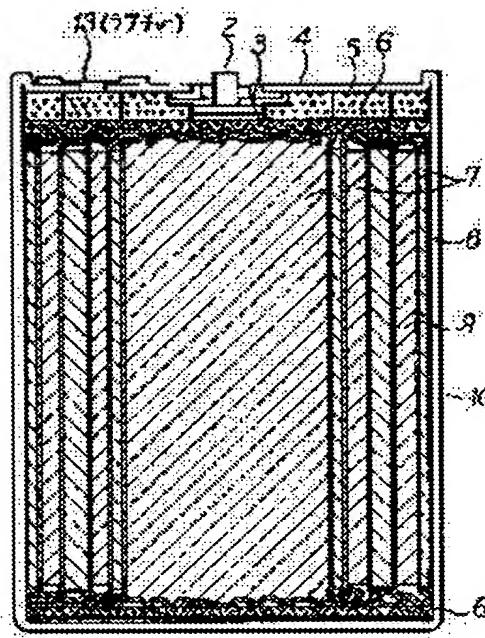
(71)Applicant : ASAHI CHEM IND CO LTD
 (72)Inventor : YAMASHITA MASATAKA
 MINATO YASUFUMI

(54) NONAQUEOUS ELECTROLYTIC BATTERY

(57)Abstract:

PURPOSE: To prevent lowering again of the once-risen inner resistance of a battery up to a higher temperature by blocking minute holes of separators in the case a battery temperature is abnormally risen.

CONSTITUTION: Between a zonal positive electrode 9 and a zonal negative electrode 8, a separator 7 consisting of a porous film or unwoven cloth mainly composed of thermoplastic resin having a wider width than the positive electrode 9 and the negative electrode 8 is interposed. The separator exposed from between the positive electrode 9 and the negative electrode 8 of the ends composed of an electrode body composed by winding or laminating the positive electrode 9, the negative electrode 8 and the separator 7 is made a short-circuit preventive margin. Thermoplastic resin is made a main constituent material. The separator and a thermofusible insulating plate hold down the short-circuit preventive margin of the separator in the whole surface of aforesaid end in the vertical direction to the end. The insulating plate pushes down the separator short-circuit preventive margin in the range of 10 to 90% of the width of the separator short-circuit preventive margin. In the case a temperature of the battery abnormally rises, the once-risen battery inner resistance can be prevented from again lowering up to a higher temperature.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 14.08.1998

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3199409

[Date of registration] 15.06.2001

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(51)Int.Cl.⁵
H 01 M 2/16
10/40

識別記号 庁内整理番号
P 7803-4K
Z 8939-4K

F I

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数1(全7頁)

(21)出願番号

特願平3-261393

(22)出願日

平成3年(1991)9月13日

(71)出願人 000000033

旭化成工業株式会社

大阪府大阪市北区堂島浜1丁目2番6号

(72)発明者 山下 正隆

神奈川県川崎市川崎区夜光1丁目3番1号

旭化成工業株式会社内

(72)発明者 渡 康文

神奈川県川崎市川崎区夜光1丁目3番1号

旭化成工業株式会社内

(74)代理人 弁理士 清水 猛 (外1名)

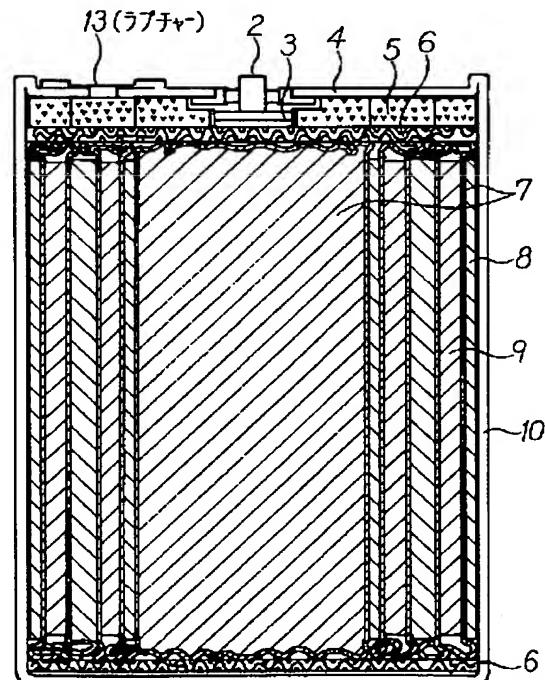
(54)【発明の名称】 非水系電解液電池

(57)【要約】

【目的】 電池の温度が異常に上昇した場合に、セパレータの微細な孔が閉塞し、一旦上昇した電池の内部抵抗が再び低下することを、より高温まで防止する。

【構成】 帯状の正極と帯状の負極との間に、前記正極および前記負極よりも幅の広い熱可塑性樹脂を主構成材料とする多孔質膜もしくは不織布からなるセパレータを介在し、前記正極、前記負極および前記セパレータを巻回もしくは積層して構成した電極体の正極および負極のエッヂとセパレータで構成される端面の正極および負極の間から露出したセパレータを短絡防止代として、熱可塑性樹脂を主構成材料とする、前記セパレータと熱融着性がある絶縁板で、前記端面の全面においてセパレータの短絡防止代を端面に垂直な方向に押さえ、当該セパレータの短絡防止代の幅の10%~90%の範囲に、セパレータの短絡防止代を当該絶縁板で倒し込む構造。

【効果】 電池の温度が異常に上昇する場合に、一旦上昇した電池の内部抵抗が再び低下することを、より高温まで防止することができる。



I

【特許請求の範囲】

【請求項1】 帯状の正極と負極との間に、前記正極および前記負極よりも幅の広い、熱可塑性樹脂を主構成材料とする多孔質膜もしくは不織布からなるセパレータを介在し、前記正極、前記負極および前記セパレータを捲回もしくは積層して構成した電極体の正極および負極のエッヂとセパレータとで構成される端面の、正極および負極の間から露出したセパレータを短絡防止代として、熱可塑性樹脂を主構成材料とする、前記セパレータと熱融着性がある絶縁板で、前記端面の全面においてセパレータの短絡防止代を端面に垂直な方向に押さえ、当該セパレータの短絡防止代の幅の10%～90%の範囲に、セパレータの短絡防止代を当該絶縁板で倒し込む構造としたことを特徴とする、非水系電解液電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、リチウム、ナトリウム等の軽金属イオンを負極との間のイオン電流のキャリアとする非水系電解液電池に関し、特に、活物質の体積充填率の高い高エネルギー密度を持つ電池に関する。

【0002】

【従来の技術】 従来、非水系電池においては、電池内部もしくは電池外部で短絡が起こると電池内部の温度が急激に上昇し、電解液の噴出、或いは電池の爆発等が発生する場合があった。これによって、その電池を使用している機器自体を破壊し、周辺に物的な若しくは人的な被害を及ぼす危険性があった。

【0003】 この問題点を解決するために、例えば、特開昭54-52157号公報、特開昭59-207230号公報等で開示されているようなセパレータを非水系電解液電池に用いることによって、電池の温度が上昇した場合にセパレータに開いた微細な孔が閉塞し、その結果、電池内部のイオン電流を遮断し、その後の電池の温度の上昇を防止し、電池の爆発等を未然に防ぐことができる。

【0004】 さらに同等の効果を得ることを目的として、特開昭61-232560号公報、特開昭63-308866号公報、特開平1-258358号公報等で開示されているような、融点の異なる二種以上の樹脂を主構成材料とするセパレータを使用する非水系電解液電池が提案されている。

【0005】 ところで、この種のセパレータを用いた非水系電解液電池では、短絡によって電池の内部の温度が上昇する場合には、セパレータの微細な孔が閉塞し、その結果、電池内部のイオン電流を遮断し、その後の電池の温度の上昇を防止し、電池の爆発等を未然に防ぐことができるが、さらに苛酷な条件の下では電流の遮断効果が充分に得られない場合がある。

【0006】 例え、特開昭55-136131号公報に開示されている正極物質にリチウム複合酸化物を用い

た非水系電解液電池、もしくは、特開昭62-90863号公報、特開昭63-299056号公報に開示されている非水系電解液電池、すなわち、正極活物質にリチウム複合酸化物を用い、負極活物質に炭素質材料を用いる非水系電解液電池において、上記公報に開示されるような特性を有するセパレータを使用すれば、電池内部もしくは外部の短絡によって電池の温度が上昇したとしても、電池容器から電解液が噴出するといった異常な事態に至ることはない。

10 【0007】 しかしながら、過大な電流による過充電、若しくは何らかの外的要因で、電池外部から強制的に加熱されるような事態が発生した場合において、セパレータの微細な孔の閉塞によって、一旦上昇した電池の内部抵抗が再び低下して、電池内部の短絡電流が増大することがあった。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】 本発明は、電池の温度が異常に上昇する場合に、セパレータの微細な孔が閉塞し、一旦上昇した電池の内部抵抗が再び低下することを、より高温まで防止する電池内部の構造を提供することを目的とする。

20 【0009】 ところで、なんらかの原因で電池温度が上昇し、セパレータの内部に存在する微細な孔を閉塞し、内部温度が一旦上昇した電池が破裂に至る暴走反応を始める以前に、速やかに冷却して内部の状態の変化を調査すると、電池内部抵抗値の再低下が認められた電池では、電極体の正極および負極のエッヂとセパレータのエッヂで構成される端面において、セパレータが凝集し、正極および負極の露出が観察される。

30 【0010】 この現象は、ポリエチレン、ポリプロピレンなどの単一組成のセパレータであっても、またポリエチレンとポリプロピレンなどの単一組成のセパレータを重ね合わせて使用した場合でも、多少の温度差はあるものの、いずれの場合においても同様に観察される。

【0011】 特に、電池のエネルギー密度および性能を向上させる目的で、厚さ $30\mu m$ 以下の薄いセパレータを使用するとこの現象が顕著に現れる。すなわち、端面でのセパレータの凝集に伴って、電池の内部抵抗が低下し、電池の内部抵抗の低下の割合は端面の面積に比例する。特に、 $2,000\text{mA h}$ を越えるような大きな容量を有する電池であって、電極体の負極、正極及びセパレータのエッヂで構成される端面の面積が 5cm^2 を越えるようであると、なんらかの対策が望まれる。

【0012】

【課題を解決するための手段】 本発明は、上記の目的を構成するために、帯状の正極と帯状の負極との間に、前記正極および前記負極よりも縦横のいずれの幅共に広い熱可塑性合成樹脂を主構成材料とする多孔質膜若しくは不織布からなるセパレータを介在し、前記正極、前記負極および前記セパレータを捲回もしくは積層して構成し

た電極体の正極および負極のエッヂとセパレータで構成される端面の、正極および負極の間から露出したセパレータを短絡防止代として、熱可塑性樹脂を主構成材料とする前記セパレータと熱融着性がある絶縁板で、前記端面の全面においてセパレータの短絡防止代を端面に垂直な方向に押さえ、当該セパレータの短絡防止代の幅の10%～90%の範囲に、セパレータの短絡防止代を当該絶縁板で倒し込む構造とすることを特徴とする。

【0013】以下、本発明を具体的に説明する。本発明における非水系電解液電池は、熱可塑性合成樹脂を主構成材料とする多孔質膜若しくは不織布からなるセパレータを使用し、当該セパレータは通常80℃～150℃の温度範囲で溶融し、セパレータの内部に存在する微細な孔を閉塞し、電池内部のイオン電流を遮断する機能を有するものである。好ましくは、さらに90℃～130℃の温度範囲でイオン電流を遮断する機能を有するセパレータを用いる。

【0014】前述のセパレータの凝集による電池の内部抵抗の低下を防止するために電池構造を検討した結果、電解液で濡れた状態でも、前記セパレータとの熱融着性が優れた熱可塑性樹脂を主構成材料とする絶縁板で、前記端面の全面において、セパレータの短絡防止代を端面に垂直な方向に押さえ、セパレータの短絡防止代を当該絶縁板で倒し込み、絶縁板とセパレータの短絡防止代とが密着する構造を探ることが有効であることが分かった。

【0015】ここで、セパレータの短絡防止代は、電極の厚さに比べて短くては、正極と負極の短絡を防止するという機能を充分に果たすことが出来ないし、逆に長すぎても、セパレータが無駄になり、電池内部の活物質の充填率が低下するばかりでなく、セパレータと絶縁板とが電極体の温度上昇に呼応して速やかに熱融着することが阻害される。すなわち、短絡防止代としては、当該正極の厚さ若しくは当該負極の厚さの大きい方の値の1倍～20倍の幅のセパレータを当該正極および負極のエッヂからはみ出させるのが好ましい。さらに好ましくは4倍～10倍の範囲にすると良い。

【0016】セパレータの短絡防止代を絶縁板で押さえて倒し込む量は、セパレータの短絡防止代の幅にもよるが、短絡防止代の幅の少なくとも90%以下に短絡防止代を倒し込む。好ましくは50%以下に短絡防止代を倒し込む。しかしながら、短絡防止代の倒し込み量が大きすぎても、電極のエッヂでセパレータを傷付ける可能性が高くなり好ましくない。従って、短絡防止代の倒し込んだ後の幅を10%程度以上にする必要がある。

【0017】ところで、絶縁板の構造として、セパレータと熱融着性のある材料だけで構成する場合には、特に、セパレータと熱融着性のある材料のなかでも、セパレータと熱融着した状態での流動性の低い材質が好ましく、また絶縁板の厚さもある程度厚くする必要性があ

る。特に、密度が0.93g/cm³以上の高密度ポリエチレン若しくはポリプロピレンを主成分とする材料が好ましく、さらに、当該絶縁板が電極体と電池容器との間のスペーサを兼ねる構造にする場合には、熱変形量が小さい材料が優れ、特に、平均分子量が100万以上の超高分子量ポリエチレンが好ましい。さらに、アルミニウム、シリカ等のセラミックの粉体、ガラス繊維、高耐熱性繊維等をフィラーとして混ぜ込む方法が効果がある。

【0018】絶縁板およびスペーサができる限り薄くし、電池内部の電極活性物質の充填量を増し、電池のエネルギー密度を高めるためには、絶縁板を、150℃以上でも強度低下の小さい高耐熱性の絶縁シートの表面にセパレータと熱融着性に優れた材質を被覆した積層構造にし、更に、150℃以上でも熱変形が小さい高耐熱性の優れた材質のスペーサで絶縁板の全面を可能な限り均一に押さえる構造を探ることが好ましい。

【0019】絶縁板は、高耐熱性の絶縁シートの一面にセパレータと熱融着性に優れた材料を被覆し、絶縁板の熱融着面をセパレータの短絡防止代を密着させれば良いが、絶縁板の表裏を誤る可能性がでてくる。この点については、絶縁板は高耐熱性の絶縁シートの両面にセパレータと熱融着性に優れた材料を被覆することで解決できる。

【0020】このような断面構造の絶縁板は、高耐熱性の絶縁シートとセパレータと熱融着性に優れる材料のフィルムとを熱融着する方法、セパレータとの熱融着性に優れる材料の微粒子の分散液を高耐熱性の絶縁シートに塗布し、微粒子の融点以上の温度に昇温する方法等によって製作できる。

【0021】また、高耐熱性の絶縁シートとセパレータとの熱融着性に優れた材料の間に粘着剤が介在しても差し支えなく、この種の積層構造は市販の高耐熱性の絶縁粘着テープをセパレータと熱融着性に優れる材料のフィルムに貼り付ける方法によって容易に製作できる。特に、両面粘着テープの両面に熱融着性に優れる材料のフィルムを貼り付ければ、表裏の区別の必要がない熱絶縁板が製作できる。

【0022】さらに、電極体と電池容器との間にスペーサが必要な部分では、150℃以上でも熱変形が小さい高耐熱性材料のスペーサの電極体の端面側の面に、セパレータと熱融着性に優れる材料を基材とする、ポリエチレン粘着テープ等のような絶縁粘着テープを貼り付ける構造を探ってもよい。

【0023】当該絶縁板を構成する耐熱シートとしては、ポリエステルフィルム、ポリエステル不織布、ノーメックスペーパー、ポリイミドフィルム、ガラスクロス、セルロースペーパー、テフロンフィルム等を使用するとよい。

【0024】本発明の電池は、基本的構造要素として正電極、負電極及びセパレータから構成されれば、とくに

制限されるものではないが、高容量の電池が容易に得られる観点からは、非水系の電池、とくに非水系二次電池に適用できる公知の各要素が適宜使用できる。例えば、正極活物質としては、リチウムを脱ドープしかつドープし得るものであればよい。例えば、 LiCoO_2 のようなリチウムコバルト酸化物、 LiMnO_2 、 LiM_2O_4 のようなリチウムマンガン酸化物などの複合金属酸化物が有利に用いることができる。

【0025】また、負極活物質としては、炭素材料であって、リチウムイオンをドープしかつ脱ドープし得るものであれば特に制限されない。例えば、グラファイト、熱分解炭素、ピッチコーカス、ニードルコーカス、有機高分子の焼成体（フェノール樹脂、アクリル繊維等の焼成体）等を用いることが出来る。

【0026】集電体としての金属箔としては、厚み50～1μmであり、銅、ニッケル、アルミニウム、ステンレススチール等を用いることが出来る。これらの金属箔の片面又は両面に上記活物質及びバインダーを接着した金属箔をセパレータ7を介して巻回した長円型または円筒型の巻回物を、電池缶10に挿入し、リードタブを取り付け、非水系電解質溶液を含浸し、封口するのが一般的である。

【0027】本発明に用いる非水系電解液としては、例えば LiClO_4 、 LiAsF_6 、 LiPF_6 、 LiBF_4 などのリチウム塩を単独又は組み合わせて使用できる。上記電解質溶液の溶媒としては、例えば、プロピレンカーボネート、エチレンカーボネート、1, 2-ジメトキシメタン、1, 2-ジメトキシエタン、γ-ブチロラクトン、テトラヒドロフラン、アセトニトリル、ギ酸ビニルなどの1種又は2種以上を使用できる。

【0028】また、セパレータとしては、ポリエチレン、ポリプロピレン等のポリオレフィン微多孔膜の1種の単独膜又はそれら1種又は2種の貼り合わせ膜を使用できる。また、ポリオレフィン、ポリエステル、ポリアミド、セルロース等の不織布も単独で或いは上記微多孔膜と組み合わせて用いることができる。電池缶の形状はとくに制限されないが、長円型、円筒型や角型などの形状の缶が一般的である。また、外装缶の材質はとくに制限されないが、銅、ステンレススチールなどを有利に用いることができる。

【0029】

【作用】本発明によれば、電池の温度が異常に上昇するような場合に、セパレータの微細な孔が閉塞した後に、電極体の正極および負極のエッヂとセパレータで構成される端面において、セパレータが凝集し、正極および負極が露出することを、セパレータの短絡防止代と絶縁板とが密着する構造を採用することにより防止出来る。従って、セパレータの微細な孔が閉塞して、一旦上昇した電池の内部抵抗が再び低下することを軽減することができる。

【0030】

【実施例】以下、本発明を詳細に説明するために実施例を示すが、これらは本発明の範囲を制限しない。正極は、活物質 LiCoO_2 に対して、5%の炭素系導電性フィラーを加えてなるコンパウンドに、ポリビニリデンフルオライドの5%DMF溶液を加えて懸濁液とし、これをアルミニウム箔の片面に均一に塗布して作成した。塗膜の厚さは116μmである。

【0031】このようにして作成した2枚の正極を金属箔面に重ね合わせ、232μmの1枚の正極箔として使用する。負極は、活物質として真比重2.3の炭素質材料を平均径10μm前後に粉碎したものに、ポリビニリデンフルオライドの5%DMF溶液を同量加えて懸濁液とし、これをニッケル箔或いは銅箔の片面に均一に塗布して作成した。塗膜の厚さは139μmである。このようにして作成した2枚の負極を金属箔に重ね合わせ、278μmの1枚の正極箔として使用する。セパレータは30μmのポリエチレン製微多孔膜を用いた。

【0032】上記正極と負極とはセパレータを介して巻回して電極体を構成し、電解液として0.6mol/Lの LiBF_4 -プロピレンカーボネート溶液を使用して電池を作成した。

【0033】

【実施例1】本発明による電極体の正極および負極のエッヂとセパレータとで構成される端面におけるセパレータの凝集防止の構造として、円筒型のスパイラル構造の電池に適用した例を図1に示す。

【0034】この電池の製作の手順は、Φ21mm×83mmのサイズの円筒缶10に絶縁板6と電極体を挿入後、負極タブ11を缶底に溶接し、電解液を電極体に含浸した。さらに、絶縁板6とスペーサ5を挿入し、ガラスメタルシール付き蓋4の正極リードピン2に正極タブ3を溶接した後に蓋4を押し込み、缶蓋をレーザー溶接する。

【0035】ここで、電極体の端面の片側当たり2mmのセパレータの短絡防止代を、それぞれ1mmまで比重0.94g/cm³の高密度ポリエチレン製の厚さ0.5mmの絶縁板6で押さえ込んでいる。スペーサ5は絶縁板6と同質の材質で作成し、上端の絶縁板6全面を均一に押さえ込む構造となっている。

【0036】このようにして試作した電池の初期容量は2,400mAhを有する。図の上では、正極、負極、セパレータ、タブ等の厚さは誇張して書いてあり、比率も実際とは異なっている。この電池を放電状態で1°C/分の比率で昇温した場合、約130°Cで電池の内部抵抗が約4桁上昇し、その状態を約160°Cまで保持する。

【0037】

【比較例1】従来から一般採られている構造を図2に示す。実施例1と異なる点は、絶縁板12に厚さ200μmのポリエステルフィルムを用いているため、セパレ

タ7の短絡防止代を絶縁板12で押さえ込む構造となつていらない点と、絶縁板12とセパレータ7に熱融着性がない点である。この電池を放電状態で1°C/分の比率で昇温した場合、約130°Cで電池の内部抵抗が約4桁上昇し、その状態を約150°Cまで保持する。

【0038】

【実施例2】次に、14mm×41mm×6.6mmの偏平な形状の電池に適用した場合を示す。電極体は帯状の正極と負極の間にセパレータを介在させて、太軸の巻軸で捲回して中空部の大きい円筒型のスパイラル構造のコイルを形成した後に、押し潰して偏平な長円形の断面のスパイラル構造のコイル成形する。成形したコイルの長円形状の底部の長軸方向に相当する電池の縦断面図を図3に示す。

【0039】コイル端面の構造の拡大図が、図4、図5、図6、図7および図8である。図4の中に示すように、絶縁板6はセパレータ7と熱融着性に優れる材料の单一の構造でも良いが、この構造の絶縁板では厚さを薄くすることが難しく、高エネルギー密度の電池を作成するには適当ではない。絶縁板の厚さを薄くするために *20

*は、図5、図6、図7および図8に示すような構造の絶縁板を使用するとよい。

【0040】すなわち、基材の厚さ50μmのノーメックスペーパーに40μmの粘着剤付き粘着テープを100μmのポリエチレンフィルムに貼り付けて絶縁板を製作する。図6の構造において、電極体の端面の片側当たり2mmのセパレータ7の短絡防止代の、絶縁板6により押さえ込む量を変えたサンプルを試作する。このようにして試作した電池の初期容量は3,000mAhを有する。印加電圧を9Vを上限とし、2.6Aの定電流で過充電試験を行い、セパレータの微細な孔が閉塞した後の電流の収束性を調べた。その結果を表1に示す。

【0041】

【比較例2】実施例2と同様の手順で、絶縁板に200μmのポリエステルフィルムを用いて試作する。印加電圧を9Vを上限とし、2.6Aの定電流で過充電試験を行った結果を表1に示す。

【0042】

【表1】

	短絡防止代の押さえ付け量 (前後比)	収束電流値
実施例2	100% (押さえ付けなし)	300mA
	50%	140mA
	40%	50mA
比較例2	100%	400mA
	40%	250mA

【0043】

【実施例3】積層構造の電極体を用いて薄型の角型の電池を制作する場合に、本発明による構造を適用した例を図9に示す。積層型の電極体では、正極9および負極8のエッヂとセパレータ7で構成される端面である4面に、本発明による構造を適用している。また、正極もしくは負極をセパレータでくるむ構造にする場合でも、図10に示すような構造にすると特に効果的である。

【0044】

【発明の効果】本発明によれば、電池の温度が異常に上昇するような場合に、一旦上昇した電池の内部抵抗が再び低下することを、より高温まで防止することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】実施例1に従う円筒型のスパイラル構造電池の部分的縦断面図を示す。

【図2】比較例1に従う円筒型のスパイラル構造電池の部分的縦断面図を示す。

【図3】実施例2に従う長円形の断面のスパイラル構造電池の縦断面図を示す。

【図4】実施例2に従って絶縁板として單一板を用いたコイル端面の構造の拡大縦断面図を示す。

【図5】実施例2に従って絶縁板として2層の積層板を用いたコイル端面の構造の拡大縦断面図を示す。

【図6】実施例2に従って絶縁板として3層の積層板を用いたコイル端面の構造の拡大縦断面図を示す。

【図7】実施例2に従って絶縁板として他の3層の積層板を用いたコイル端面の構造の拡大縦断面図を示す。

【図8】実施例2に従って絶縁板として5層の積層板を用いたコイル端面の構造の拡大縦断面図を示す。

【図9】実施例3に従う積層構造の電極体を用いた角型電池の斜視図を示す。

【図10】実施例3に従う電極をセパレータでくるむ構造のコイル端面の縦断面図を示す。

【符号の説明】

50 1 電池容器

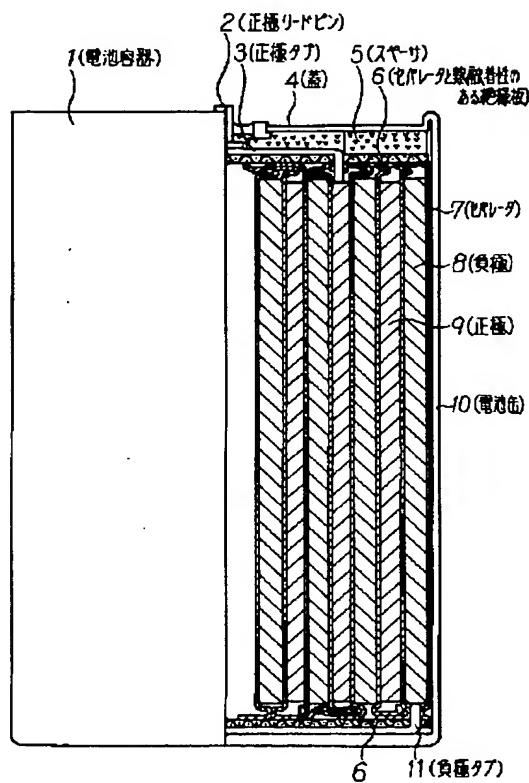
9

2 正極リードピン
 3 正極タブ
 4 ガラスースメタルハウメチックシール付きの蓋
 5 スペーサー
 6 セパレーターと熱融着性のある絶縁板
 7 セパレーター
 8 負極
 9 電池缶

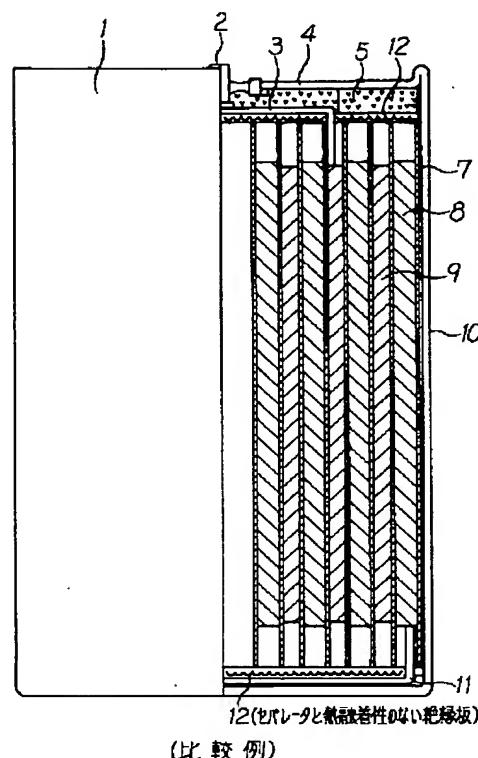
10

10 電池缶
 11 負極タブ
 12 セパレーターと熱融着性のない絶縁板
 13 ラブチャー
 14 高耐熱性絶縁層
 15 セパレーターと熱融着性のある層
 16 粘着剤層

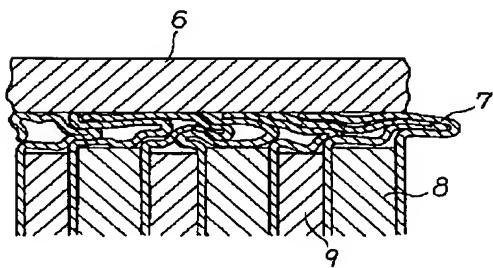
【図1】



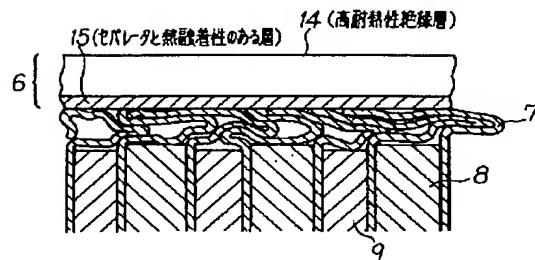
【図2】



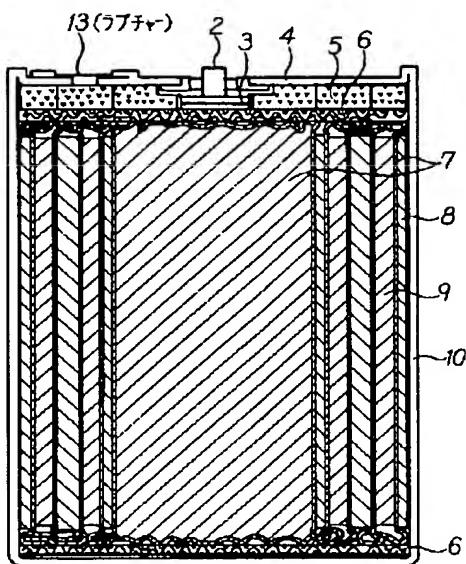
【図4】



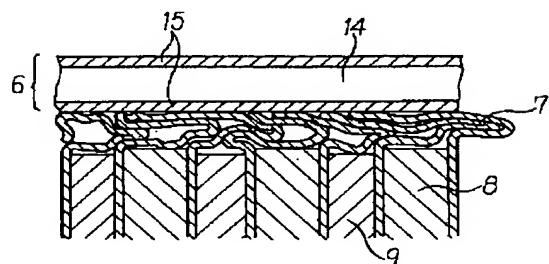
【図5】



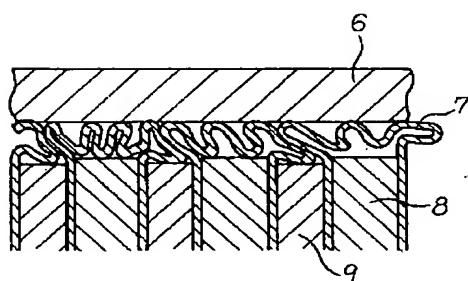
【図3】



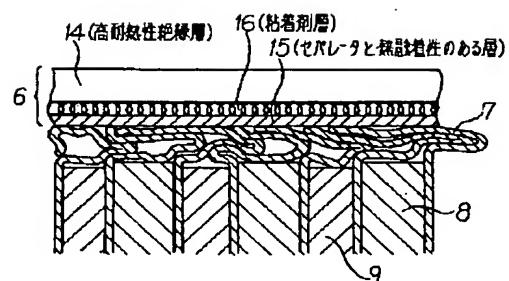
【図7】



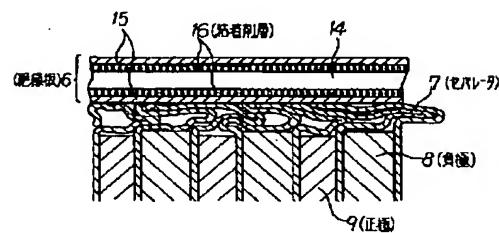
【図10】



【図6】



【図8】



【図9】

